

(19)日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

特開平5-139924

(43)公開日 平成5年(1993)6月8日

(51)Int.Cl.

A 0 1 N 65/00

識別記号

庁内整理番号

A 7106-4H

F I

技術表示箇所

審査請求 未請求 請求項の数6(全 6 頁)

(21)出願番号 特願平3-335687

(22)出願日 平成3年(1991)11月25日

(71)出願人 591014972

株式会社 伊藤園

東京都渋谷区本町3-47-10

(72)発明者 荒井 昌彦

静岡県榛原郡相良町女神21 株式会社伊藤園中央研究所内

(72)発明者 増田 信義

静岡県榛原郡相良町女神21 株式会社伊藤園中央研究所内

(72)発明者 田浦 良昭

静岡県榛原郡相良町女神21 株式会社伊藤園中央研究所内

(74)代理人 弁理士 竹内 三郎 (外1名)

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 天然成分を有効成分とする植物病害防除剤

(57)【要約】

【目的】 農業、園芸、ゴルフ場を含む造園等の分野での植物の栽培において、糸状菌、細菌等の由来による植物病害の予防、駆除のために植物又は土壤に施用する植物病害防除剤に関するもので、人が長年に渡り食品として摂取し安全性が認められている天然物由来のものを提供する。

【構成】 シンナミックアルデヒド、オイゲノール、ヒノキチオール、シネオール、メントール、カルボン、クミナール、アネトールを含有するシナモン、カシヤ、クローブ、ヒノキ、ユーカリノキ、ハッカ、スベアミント、クミン、スターアシス、キャラウェイ等の天然物から抽出した精油乃至該精油の上記主成分を1種以上有して構成した。また、茶からの抽出物或いは茶から抽出分離して得られた茶カテキン類、茶サポニン類等の茶由来の成分を1種以上有し、或いは、上記精油乃至その主成分と上記茶抽出物乃至茶由来の成分とを混合した。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 着香料天然物からの抽出物乃至その主成分を1種以上有した天然成分を有効成分とする植物病害防除剤。

【請求項2】 シンナミックアルデヒド、オイゲノール、ヒノキチオール、シネオール、メントール、カルボン、クミナール、アネトールを含有するシナモン、カシヤ、クローブ、ヒノキ、ユーカリノキ、ハッカ、スベアミント、クミン、スターアシス、キャラウェイ等の天然物からの抽出物乃至その上記主成分を1種以上有した天然成分を有効成分とする植物病害防除剤。

【請求項3】 天然物からの抽出成分であるシンナミックアルデヒド、オイゲノール、ヒノキチオール、シネオール、メントール、カルボン、クミナール、アネトールを1種以上有した天然成分を有効成分とする植物病害防除剤。

【請求項4】 茶からの抽出物或いは茶から抽出分離して得られた茶カテキン類、茶サポニン類等の茶由来の成分を1種以上有した天然成分を有効成分とする植物病害防除剤。

【請求項5】 茶から抽出分離して得られた茶サポニン類を含有してなる天然成分を有効成分とする植物病害防除剤。

【請求項6】 請求項1乃至3に記載の有効成分と請求項4乃至5に記載の有効成分とを混合含有してなることを特徴とする天然成分を有効成分とする植物病害防除剤。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、農業、園芸、ゴルフ場を含む造園等の分野での植物の栽培において、糸状菌、細菌等の由来による植物病害の予防、駆除のために施用する植物病害防除剤に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】従来から農業、園芸、ゴルフ場を含む造園等の分野における植物の栽培では、植物病害の予防、駆除には化学的に合成された有機リン系、有機イオウ系等の殺菌剤が使用されている。

## 【0003】

【発明が解決しようとする課題】しかし、これらの殺菌剤は、抗菌効果は優れているものの毒性の強いものが多く、土壌の生態系の破壊や河川や地下水への流出による人体や魚に対する悪影響が叫ばれており、安全性の高い薬剤の需要が高まってきている。

【0004】本発明者は、上記に関し、人が長年に渡り食品として摂取し安全性が認められている天然物の安全性に着眼すると共に、或る種の天然物の内に過去にボチリヌス菌、ブドウ球菌、腸炎ビブリオ菌等の食中毒細菌に対する抗菌効果が認められていることに着目し、人体に安全な天然物であってしかも植物病害に対して予防効果或いは駆除効果を有する天然物由来の植物病害防除剤

を開発、提供せんとしたものである。

## 【0005】

【課題を解決するための手段】本発明は、上記課題を解決するために、天然物である着香料天然物の抽出物乃至はその成分、並びに茶の抽出物乃至はその成分を有効成分としてなる植物病害防除剤を提供する。

【0006】即ち、本発明は、着香料天然物からの抽出物乃至その主成分を1種以上有した天然成分を有効成分として植物病害防除剤としたものである。有効成分として、最も顕著な植物病害防除（抗菌）作用を奏するものは、その主成分であるシンナミックアルデヒド、オイゲノール、ヒノキチオール、シネオール、メントール、カルボン、クミナール、アネトールであり、この主成分を1種以上有して植物病害防除剤となすのが極めて効果的である。

【0007】また、上記成分を含有するシナモン、カシヤ、クローブ、ヒノキ、ユーカリノキ、ハッカ、スベアミント、クミン、スターアシス、キャラウェイ等の天然物から抽出したシナモン油、カシヤ油、クローブ油、ヒノキ油、ハッカ油、ユーカリ油、スベアミント油、クミン油、スターアニス油、キャラウェイ油等の精油が明確な植物病害防除作用を奏し、これら精油を1種以上有して植物病害防除剤となすのも好ましい。前記主成分と上記精油とを各1種以上組み合わせることができる。

【0008】一方、天然成分を有効成分とする植物病害防除剤として、茶（茶の種子を含む、以下同じ）からの抽出物、或いは茶から抽出分離して得られた茶カテキン類、茶サポニン類等の茶由来の成分、特に茶サポニン類も有効な作用を奏し、これらを1種以上有して植物病害防除剤となすことができる。

【0009】前記天然抽出物、主成分乃至精油と茶抽出物、茶サポニン等の茶由来成分とを混合することにより、植物病害防除作用を一層効果的に高めることができる。

【0010】さらに本発明に係る植物病害防除剤について説明すると、本発明に係る植物病害防除剤に関し、その抽出物或いは成分が有効成分となる天然物とは、シンナミックアルデヒド、オイゲノール、ヒノキチオール、シネオール、メントール、カルボン、クミナール、アネトールのいずれかを成分として含有するものである。

【0011】例えば、シンナミックアルデヒドを含むものとしてシナモンやカシヤが、オイゲノールを含むものとしてクローブが、ヒノキチオールを含むものとしてヒノキが、シネオールを含むものとしてユーカリノキが、メントールを含むものとしてハッカが、カルボンを含むものとしてスベアミントやキャラウェイが、クミナールを含むものとしてクミンが、アネトールを含むものとしてスターアニスやアニスが挙げられる。

【0012】これらの天然物の葉、茎、果実、花等の乾物または新鮮物を熱水あるいはエタノール、メタノー

ル、アセトン、エーテル等の有機溶媒により抽出したものや水蒸気蒸留等により蒸留したもの、また水蒸気蒸留によって得られた各油分から常法によって分離精製して得られるシナミックアルデヒド、オイゲノール、ヒノキチオール、シネオール、メントール、カルボン、クミナール、アネトールが本植物病害防除剤の有効成分となり得る。

【0013】次に、本発明に係る植物病害防除剤の有効成分の抽出或いは抽出分離に用いる茶は、茶類に含まれるものであれば特に限定されるものでなく、緑茶等の不発酵茶、烏龍茶等の半発酵茶、紅茶等の発酵茶や、またこれらの未加工の茶葉を用いることができる。茶からの抽出物とは、これらの茶類を熱水又はエタノール、メタノール、アセトン等の親水性の有機溶媒によって抽出したものをいう。

【0014】ここでいう茶カテキン類とは、不発酵茶に含まれるエピガロカテキン、エピカテキンガレート、エピカロカテキンガレート及びこれらのカテキン類を含む粗物をいうが、発酵茶に含まれるカテキンの酵素酸化物であるテアフラビン類や半発酵茶のカテキン酵素酸化物もこれに含まれる。茶粗カテキンは、茶葉を熱水或いはエタノール、アセトン等の親水性の有機溶媒にて抽出し、次にクロロホルムにより脱カフェイン処理を行い、さらに酢酸エチルで分配し濃縮することにより得られる。また、これをさらに分取用HPLCによって分離すると各カテキンの精製物が得られる。

【0015】茶サポニン類とは、茶葉の各種サポニンと茶種子の各種サポニン及び茶葉、茶種子の各種サポニンを含む粗物をいうが、茶葉をメタノールまたは水で抽出し、さらにブタノール抽出してカラムクロマト法によって分離すると茶葉サポニン精製物が、また茶種子を脱脂後にアルコールで抽出し、これをエーテルと塩酸に溶解、沈殿させることによって茶種子サポニン精製物がそれぞれ得られる。

【0016】なお、以上述べた茶カテキン類及び茶サポニン類の抽出分離の方法は、精製物を得るための方法の一例であり、本植物病害防除剤の有効成分に用いる茶成分の抽出精製は、これらの方法に限定されない。

【0017】本発明の植物病害防除剤を適用し得る植物病原菌は、リゾクトニア菌(Rhizoctnia)、ピシウム菌(Pythium)、カーブラリア菌(Curvularia)、ヘルミントスポリウム菌(Helminthosporium)、ピリクラリア菌(Pyricularia)等が挙げられるがこれらに限定されない。また、病原菌の予防駆除の対象とする植物は、芝、イネ等が挙げられるが、他の野菜、果樹にも有効である。

【0018】本植物病害防除剤の成分組成や適用量は、予防駆除の対象とする病原菌や植物の種類や投与時期や環境条件によって変化するため、特に限定されない。また使用形態に関しては、液状、ゲル状、固状のいずれで

も可能で特に限定されず、高分子吸収剤やゼオライト等の鉱物に吸着させて用いることもできる。

【0019】

【発明の効果】本発明によって、天然物からの抽出成分であるシナミックアルデヒド、オイゲノール、ヒノキチオール、シネオール、メントール、カルボン、クミナール、アネトール、或いは、着香用天然物からの抽出物、例えばシナモン、カシヤ、クローブ、ユーカリノキ、ハッカ、スベアミント、クミン、スターアニス、キャラウェイ等からの抽出した精油は、植物病原菌に対して優れた抗菌効果を有しており、また、茶抽出物若しくは茶成分も抗菌効果を有しており、さらにまた、これらの混合組成物も顕著な抗菌効果を有していることが明らかとなり、しかも、これらの有効成分は、長年に亘り人が飲料や食品として利用してきた天然物由来の成分であるため、環境に対して悪影響が少なく、又人体に対しても安全なものであり、植物病害の予防剤、駆除剤として好適な植物病害防除剤を提供することができものである。

【0020】

【実施例】以下、本発明に係る植物病害防除剤について実施例を上げて抗菌効果を具体的に説明するが、本発明はその要旨を越えない限り、これらの実施例に限定されるものではない。

【0021】〔実施例1〕着香料天然物の抽出物及び成分の植物病原菌に対する増殖阻止効果を調べた。シナモン、カシヤ、クローブ、ユーカリノキ、ハッカ、スベアミント、クミン、スターアニス、キャラウェイ、ヒノキの抽出物、及びシナモン抽出物、クローブ抽出物、ハッカ抽出物、スターアニス抽出物から得られた成分のシナミックアルデヒド、オイゲノール、メントール、アネトールについて効果の検定を行った。

【0022】各天然物の抽出物として、シナモンの乾燥樹皮、カシヤの乾燥葉、クローブの乾燥花蕾、ユーカリノキの新鮮葉、ハッカの乾燥葉、スベアミントの乾燥全草、クミンの果実、スターアニスの乾燥果、キャラウェイの果実、ヒノキの幹材をそれぞれ水蒸気蒸留して得たシナモン油、カシヤ油、クローブ油、ユーカリ油、ハッカ油、スベアミント油、クミン油、スターアニス油、キャラウェイ油、ヒノキ油を用いた。

【0023】シナミックアルデヒドは、シナモン油に2倍量の酸性亜硫酸ナトリウムを加え、これに希エタノールを加えて煮沸後に冷却、濾過し、80%エタノールで洗浄、乾燥後に同量の硫酸を加えて得られたものを用いた。オイゲノールは、クローブ油を3倍量の10%水酸化ナトリウムに溶解し、エーテルで浸出させてテルペン類を除去した後にアルカリ溶液に希硫酸を加え、さらに減圧下で蒸留して得られたものを使用した。メントールは、ハッカ油を冷却、遠心分離して得られたものを用いた。また、アネトールは、スターアニス油を冷却して

結晶化して得たものを使用した。

【0024】抗菌効果の検定の対象とした植物病原菌は、ゴルフ場等に利用されている寒地型芝草に発生するブラウンパッチ病、赤焼け病、葉枯れ病のそれぞれの病原菌であるRhizoctonia solani

【外1】

kühn

(以下R菌とする)、Pythium aphanidermatum (以下P菌とする)、Curvulariaspp. (以下C菌とする)の3種とした。

【0025】これら抽出物及び成分の芝草病原菌に対する増殖阻止効果の検定は、ポテトシュークローズ培地を用いた寒天希釈法にて、各病原菌ごとに濃度3水準(50、500、5000ppm)で各3連で行ない、各濃\*

[表 1]

=所定天然物の抽出物・成分のR菌に対する増殖阻止率=

供試物\濃度	50	500	5000
(抽出物)			
・シナモン油	64	100	100
・カシヤ油	51	100	100
・クローブ油	54	100	100
・ヒノキ油	92	100	100
・ハッカ油	0	55	100
・ユーカリ油	0	50	100
・スペアミント油	0	37	100
・クミン油	0	57	100
・スターアニス油	0	75	100
・キャラウェイ油	0	45	100
(成分)			
・シナピクリン酸	85	100	100
・オイゲノール	57	100	100
・メントール	47	100	100
・アネトール	10	100	100

【0028】

[表 2]

=所定天然物の抽出物・成分のP菌に対する増殖阻止率=

供試物\濃度	50	500	5000
(抽出物)			
・シナモン油	9	100	100
・カシヤ油	23	100	100
・クローブ油	0	100	100
・ヒノキ油	100	100	100
・ハッカ油	0	60	100
・ユーカリ油	0	63	100
・スペアミント油	17	69	100
・クミン油	0	40	100
・スターアニス油	0	43	100
・キャラウェイ油	0	57	100
(成分)			
・シナピクリン酸	19	100	100

\* 度ごとに無添加区に対する病原菌の菌糸の伸長度合から増殖阻止率(%)を求めた。阻止率100%は菌糸の伸長が0、阻止率50%は菌糸の伸長が1/2であることを示している。なお、P菌は30℃で24時間、R菌、C菌は25℃でそれぞれ3日間、6日間培養してから検定を行った。また、上記の抽出物及び精油成分は、ショ糖脂肪酸エステルによって乳化し、所定の濃度に希釈して検定に用いた。

【0026】供試物のR、P、C菌に対する増殖阻止効果を表1、表2、表3に示す。これらの結果から、供試した各天然物の抽出物及び成分には、各菌に対して500ppm又は5000ppmで完全に増殖を阻止するという優れた抗菌作用があることがわかった。

【0027】

7

・オイゲノール	23	100	100
・メントール	0	100	100
・アネトール	4	100	100

【0029】

〔表 3〕

=所定天然物の抽出物・成分のC菌に対する増殖阻止率=

供試物\濃度	50	500	5000
(抽出物)			
・シナモン油	52	77	100
・カシヤ油	0	52	100
・クローブ油	35	79	100
・ヒノキ油	100	100	100
・ハッカ油	0	51	100
・ユーカリ油	0	40	100
・スベアミント油	0	48	100
・クミン油	0	63	100
・スターアニス油	0	38	100
・キャラウェイ油	0	49	100
(成分)			
・シタールゲ'ヒド'	19	100	100
・オイゲノール	23	100	100
・メントール	0	100	100
・アネトール	0	100	100

【0030】〔実施例2〕茶抽出物及び茶成分の植物病原菌に対する増殖阻止効果を調べた。植物病原菌に対する増殖阻止効果の検定は、緑茶、烏龍茶及び紅茶の抽出物と茶成分である茶粗カテキン、茶種子サポニンについて行った。

【0031】緑茶、烏龍茶及び紅茶の抽出物としては、各茶葉を20倍量の熱水で10分間抽出し、真空凍結乾燥して得られたものを用いた。茶粗カテキンとしては、緑茶を10倍量の熱水で抽出し、これを減圧濃縮した後、クロマトカラムで蒸留水と15%アセトン溶液で抽出し、さらに濃縮、凍結乾燥して得られたもの（総カテキンで約70%）を用いた。また、茶種子粗サポニンは、茶種子を脱脂後にアルコールで抽出したものを使用した。

【0032】対象とした植物病原菌は、実施例1と同様の3種類の芝草病原菌とした。また、増殖阻止効果の検定も実施例1の方法に準じて行った。

【0033】各供試物のR菌に対する増殖阻止率を表4に、P菌に対する増殖阻止率を表5に、C菌に対する増殖阻止率を表6にそれぞれ示した。これらの結果から、いずれの供試物についても各病原菌に対して増殖阻止効果が見られ、投与濃度が高くなるに従って増殖阻止率も上がっていることが判明した。

【0034】

〔表 4〕

=茶抽出物・茶成分のR菌に対する増殖阻止率=

供試物\濃度	50	500	5000
・緑茶熱水抽出物	0	3	60
・烏龍茶熱水抽出物	0	31	85
・紅茶熱水抽出物	0	3	81
・茶粗カテキン	0	3	89
・茶種子粗サポニン	37	67	75

【0035】

〔表 5〕

=茶抽出物・茶成分のP菌に対する増殖阻止率=

供試物\濃度	50	500	5000
・緑茶熱水抽出物	0	20	88
・烏龍茶熱水抽出物	0	13	100
・紅茶熱水抽出物	0	25	100
・茶粗カテキン	0	19	99
・茶種子粗サポニン	0	5	65

【0036】

〔表 6〕

=茶抽出物・茶成分のC菌に対する増殖阻止率=

供試物\濃度	50	500	5000
・緑茶熱水抽出物	0	3	43
・烏龍茶熱水抽出物	0	0	41
・紅茶熱水抽出物	0	5	43
・茶粗カテキン	3	15	72
・茶種子粗サポニン	19	69	89

50 【0037】〔実施例3〕上記所定天然物抽出物と茶抽

出物の混合物のR菌、P菌に対する増殖阻止相乗効果を調べた。実施例1、2で使用した烏龍茶熱水抽出物、シナモン油、クローブ油、ハッカ油、ヒノキ油の5成分の含有比率を変化(烏龍茶抽出物20%~50%、シナモン油20%~40%、ハッカ油10%~40%、ヒノキ油20%~40%)させて計17種類の組成を作成し、これらの組成について実施例1、2で用いた芝草病原菌のP菌、R菌に対する増殖阻止効果を調べた。効果の検定は、ポテトシュークロース培地を用いた寒天希釈法によって濃度3水準以上で3連で行ない、各濃度における\*10

\*病原菌の増殖阻止率を対数グラフにプロットして50%阻止濃度ED<sub>50</sub>(median effective dose)を求め、各精油物単品のED<sub>50</sub>と比較して烏龍茶抽出物の相乗効果の有無を調べた。なお、各病原菌の培養条件は、実施例1と同様にした。

【0038】17種類の組成のうちP、R菌の各々について、烏龍茶の相乗効果がみられた組成とその効果を表7に示す。

【0039】

〔表 7〕

個別物と混合組成物のR菌、P菌に対する増殖阻止効果(増殖阻止率50%における濃度ppm)

供試物(組成)	R菌に対するED <sub>50</sub>	P菌に対するED <sub>50</sub>
・烏龍茶抽出物100%	1136	1333
・シナモン油100%	36	63
・クローブ油100%	47	108
・ハッカ油100%	425	355
・ヒノキ油100%	26	33
・混合組成物A	19	55
・混合組成物B	27	26

【0040】上記混合組成物Aは、烏龍茶抽出物20%、シナモン油40%、クローブ油40%からなるものであり、R菌に対する阻止効果が最も顕著であった。上※

※記混合組成物Bは、烏龍茶抽出物20%、シナモン油10%、ハッカ油30%、ヒノキ油40%からなるものであり、P菌に対する阻止効果が最も顕著であった。

フロントページの続き

(72)発明者 行木 敬  
静岡県榛原郡相良町女神21 株式会社伊藤  
園中央研究所内

(72)発明者 川崎 年夫  
静岡県榛原郡相良町女神21 株式会社伊藤  
園中央研究所内